



PCT
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : B01J 8/06, 19/24, 19/18, 8/00, 8/18, 8/22, 4/04, C07C 209/36, C06B 21/00	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 98/55216 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 10. Dezember 1998 (10.12.98)
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/03037</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 22. Mai 1998 (22.05.98)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 197 23 322.8 4. Juni 1997 (04.06.97) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LANGER, Reinhard [DE/DE]; Scheiblerstrasse 111, D-47800 Krefeld (DE).</p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).</p>		<p>(81) Bestimmungsstaaten: BR, CA, JP, MX, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i></p>

(54) Title: REACTOR FOR CARRYING OUT RAPID HIGHLY EXOTHERMIC REACTIONS AND USE THEREOF

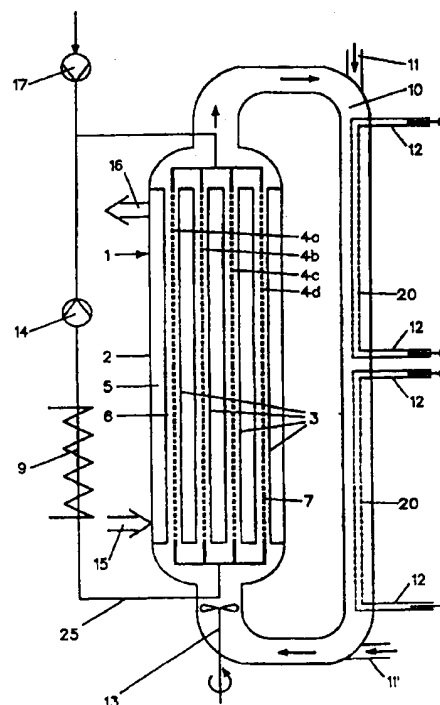
(54) Bezeichnung: REAKTOR ZUR DURCHFÜHRUNG RASCHER STARK EXOTHERMER REAKTIONEN UND DESSEN VERWENDUNG

(57) Abstract

The invention relates to a tube bundle reactor (1) for rapid highly exothermic reactions, consisting of a reactor housing (2) with a bundle (3) of tubes (6) as a reaction zone, said tubes being optionally interconnected radially in relation to their longitudinal extension, eduction pipes (4, 11), a product outlet (12) and a heat exchanger (5). The invention is characterised in that said eduction pipes (4) are configured as pipelines (4a, 4b, 4c, 4d) which are arranged in the tubes (6) of the bundle (3) and which are provided with a plurality of openings (7), said openings (7) in the pipelines (4a, 4b, 4c, 4d) being spread over the entire length of or a section of the length of the reaction zone.

(57) Zusammenfassung

Es wird ein Rohrbündelreaktor (1) für rasche stark exotherme Reaktionen beschrieben. Dieser besteht aus einem Reaktorgehäuse (2) mit einem Bündel (3) von Rohren (6), die ggf. radial zu ihrer Längenausdehnung miteinander verbunden sind, als Reaktionszone, Eduktzuleitungen (4, 11), einem Produktauslaß (12) und einem Wärmetauscher (5) und ist dadurch gekennzeichnet, daß die Eduktzuleitungen (4) als in den Rohren (6) der Bündel (3) verlaufende und mit einer Vielzahl von Öffnungen (7) versehene Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) ausgeführt sind, wobei die Öffnungen (7) in den Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) über die ganze Länge oder einen Längenabschnitt der Reaktionszone verteilt sind.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Letland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshjan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauritanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Reaktor zur Durchführung rascher stark exothermer Reaktionen und dessen
Verwendung

5 Die vorliegende Erfindung betrifft einen Reaktor zur Durchführung rascher stark
exothermer Reaktionen in der flüssigen Phase. Der Reaktor besteht im Wesentlichen aus
einem gekühlten Rohrbündel. In den Rohren sind poröse Leitungen angebracht, über die
einer der Reaktanden eindosiert wird, derart, daß entlang der Rohrachse gleichmäßig die
10 Reaktionswärme freigesetzt wird und keine Bereiche mit zu hoher Eduktkonzentration
entstehen. Das Reaktionsmedium durchströmt die Reaktorrohre in einer definierten
Richtung, wird an dem einen Ende des Rohrbündelreaktors entnommen und gegebenen-
falls in einem Umpump-Kreislauf dem anderen Ende wieder zugeführt.

Der Reaktor ist besonders geeignet zur Sumpffasenhydrierung von Dinitrotoluol.

15 Reaktoren für schnelle stark exotherme Umsetzungen verlangen eine effektive Ableitung
der Reaktionswärme. Die bekannten Reaktoren weisen daher zu diesem Zweck komplexe
Einbauten auf und sind ferner mit leistungstarken Rührern versehen, um die Reaktanden
rasch zu vermischen und die frei werdende Wärme auf die Wärmetauscherflächen zu
20 übertragen.

Solche Reaktoren sind z.B. in den Schriften US-A 3 243 268 und EP-A 263 935
beschrieben.

25 Die Nachteile der bekannten Reaktoren sind ungleichmäßige Durchströmung der Wärme-
tauscher und ungleichmäßige Durchmischung der Reaktanden. Damit können die Para-
meter Temperatur und Eduktkonzentration in Teilen des Reaktors ungünstige Werte
annehmen, was zu Produkt-Ausbeuteverlust und Schädigung eines beteiligten Katalysators
führt.

30 Ferner können sich feste Katalysatoren in schlecht durchströmten Bereichen des Reaktors
ablageren.

Ziel ist eine Reaktorkonstruktion, die erlaubt, rasch ablaufende, stark exotherme Reaktionen kontrolliert in der Nähe der Wärmetauscherflächen ablaufen zu lassen und die zuverlässig eine gleichmäßige Durchströmung des gesamten Reaktors gewährleistet.

- 5 Gegenstand der Erfindung ist ein Rohrbündelreaktor für rasche stark exotherme Reaktionen bestehend aus einem Reaktorgehäuse mit einem Bündel von Rohren, die gegebenenfalls radial zu ihrer Längenausdehnung mit einander verbunden sind, als Reaktionszone, Eduktzuleitungen, Produktauslaß und Wärmetauscher dadurch gekennzeichnet, daß eine
10 Eduktzuleitung als in den Rohren der Bündel verlaufende und mit einer Vielzahl von Öffnungen versehene Rohrleitungen ausgeführt ist, wobei die Öffnungen in den Rohrleitungen über die ganze Länge oder einen Längenabschnitt der Reaktionszone verteilt sind.

Bevorzugt weisen die Reaktionsrohre eine Katalysatorschüttung auf.

- 15 Der maximale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen in der Eduktzuleitung beträgt insbesondere 1 mm bevorzugt 0,7 mm.

Der minimale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen in der Eduktzuleitung beträgt insbesondere 1 μ m bevorzugt 7 μ m.

- 20 In einer bevorzugten Ausführung der Erfindung ist die Eduktzuleitung Teil einer Eduktschleife mit einem Fördermittel, z.B. einer Umwälzpumpe und einem besonderen Wärmetauscher.

- 25 In einer bevorzugten Ausführung weist der Reaktor eine Umpumpschleife für die Reaktionsmischung mit einem Fördermittel, mindestens einer weiteren Eduktzuleitung und einen Auslaß für das Reaktionsprodukt auf. Das Fördermittel ist beispielsweise eine Mammutpumpe oder eine Umwälzpumpe.

- 30 Je nach Art der durchzuführenden Reaktion ist es vorteilhaft in der Umpumpschleife des Reaktor eine Katalysatorsuspension umlaufen zu lassen.

5 Im Bereich vor dem Eingang des Bündels von Reaktionsrohren des Reaktors ist in einer bevorzugten Variante der Erfindung eine Gaszuführung für gasförmige Reaktanden und ggf. zusätzlich ein Mischerelement, insbesondere ein statischer und/oder dynamischer Mischer, angeordnet um eine zügige Durchmischung mit den umlaufenden Reaktanden zu erreichen.

10 In einer weiteren Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors schließt sich in dem Reaktor an die aus den Rohren gebildete Reaktionszone eine adiabatische Verweilzone an, in der die Reaktionsmischung weiter reagieren kann.

15 In der Umpumpschleife kann eine Zuleitung für Katalysator vorgesehen sein, wenn z.B. Katalysator in einer Suspension in der Schleife mit umgepumpt wird. Auch ist die Ableitung für das Reaktionsprodukt in einer bevorzugten Ausführung in der Umpumpschleife angeordnet. Die Produktableitung ist bevorzugt ein Absetztank mit Auslauf oder besonders bevorzugt eine Filtrationseinheit, insbesondere eine Einheit zur Querstrom-

20 Weiterer Gegenstand der Erfindung ist die Verwendung des erfindungsgemäßen Reaktors zur Durchführung stark exothermer Reaktionen, insbesondere zur Hydrierung von Dinitrotoluol.

25 Als Wärmetauscher umgebene Rohrbündel können solche verwendet werden, wie sie aus dem Stand der Technik grundsätzlich bekannt sind, d.h. Rohrbündel die zwischen 10 und 100 000 Rohre, bevorzugt zwischen 100 und 10 000 Rohre mit einem Innendurchmesser von 10 bis 100 mm, bevorzugt von 20 bis 50 mm besitzen.

Die Rohrlänge beträgt je nach Anwendungsfall insbesondere von 1 bis 50 m, bevorzugt von 2 bis 20 m, besonders bevorzugt von 3 bis 10 m.

30 Die Reaktionswärme kann durch Siedekühlung oder mittels flüssiger Wärmeträger abgeführt werden, bevorzugt wird durch Siedekühlung direkt Dampf erzeugt.

Der Wärmeträger kann sich in einem die Rohre umgebenden Wärmetauscher bewegen. Alternativ kann die Reaktionszone in dem rohrähnlichen Bereich zwischen einer Schar von Wärmeaustauscherrohren angeordnet sein. Dabei fließt also der Wärmeträger durch ein Rohrbündel, während die Reaktion in den miteinander verbundenen rohrähnlichen Zwischenräumen abläuft (Typ Lindereaktor). Bevorzugt findet in den Rohren die Reaktion statt und befindet sich der Wärmeträger in dem die Reaktionsrohre umgebenden Wärmetauscher.

Im erfindungsgemäßen Reaktor befinden sich, wie oben erwähnt, parallel zur Wärmeaustauscherwand poröse Leitungen, durch die mindestens eines der Edukte fließt. Diese Eduktleitungen können im Kontakt zur Wärmeträgerwand stehen oder sind in einem Abstand von 1 bis 50 mm, bevorzugt von 2 bis 25 mm, besonders bevorzugt von 4 bis 12 mm von der Wärmeaustauscherwand angeordnet.

In gekühlten Bereichen des Reaktors besitzen die Eduktleitungen Poren, insbesondere Löcher oder Bohrungen als Öffnungen.

Die Öffnungen sind insbesondere in regelmäßigen Abständen derart angebracht, daß auf eine Pore von 10 bis 100 000, bevorzugt von 30 bis 10 000, besonders bevorzugt von 100 bis 1000 ml Reaktionsraum kommen. Leitungen aus Metallsinterwerkstoff mit einer sehr großen Porenzahl können ebenfalls eingesetzt werden.

Der Druckverlust beim Durchströmen der Poren ist insbesondere so bemessen, daß aus allen Poren ungefähr die gleiche Menge Edukt langsam ausströmt.

Die Eduktleitungen sind wie beschrieben bevorzugt zu einem Eduktkreislauf zusammengefaßt, so daß in den Leitungen keine Bereiche sind, in denen das Edukt nicht oder nur sehr langsam fließt. Ferner bietet der Eduktkreislauf den Vorteil, daß das Edukt gekühlt werden kann.

Um den Reaktor stark durchströmen zu können, muß der größte Teil der den Reaktor durchfließenden Materie in der bevorzugten Variante dem Reaktoreingang wieder zugeführt werden. Dies erfolgt im Sinne eines Schleifen-Reaktors, in dem die beiden Reaktorenden mit einer Leitung verbunden sind.

5

In dieser Leitung können sich Vorrichtungen zur Durchführung einer Querstromfiltration befinden, um Feststoffe die im Reaktor verbleiben sollen zurückzuhalten, während das gebildete Produktgemisch ausgeschleust wird. Dadurch können heterogene Kontakte im Reaktor zurückgehalten werden. Heterogene Katalysatoren können aber auch von einem entnommenem Teilstrom auf konventionelle Art abgetrennt und wieder rezykliert werden. An einer geeigneten Stelle muß eine Vorrichtung zum Umpumpen des Reaktor-Loop-Inhaltes angebracht sein. Dies kann z.B. eine Kreislumpumpe oder ein Propeller sein.

10

Wird als eine Reaktionskomponente ein Gas, z.B. Wasserstoff eingesetzt, so kann dieses Gas einfach vor dem Rohrbündel eingedüst werden und wird mit der Flüssigkeit im Kreis gefahren, bevorzugt wird das Gas von unten eingespeist, durch Verwirbelung oder gezielt durch eine Gasverteilung auf die Reaktorrohre verteilt am oberen Reaktorende von der Flüssigkeit separiert und wieder dem unteren Reaktorende zugeführt.

15

Bei einem solchen gepumpten Gaskreislauf kann ggf. auf die besondere Pumpe im Umpump-Kreislauf verzichtet werden, weil das Gas den Flüssigkeitskreislauf in Bewegung setzt und antreibt.

20

Der erfindungsgemäße Reaktor ist besonders geeignet zur Hydrierung von Nitroaromaten. Besonders bevorzugt wird Dinitrotoluol zu Toluyldiamin hydriert. Durch die geringen DNT-Konzentrationen an allen Stellen des Reaktors wird eine besonders geringe Nebenproduktbildung und Katalysatordesaktivierung beobachtet.

25

Der Reaktor kann unter Normaldruck (Umgebungsdruck) oder unter erhöhtem Druck betrieben werden, bevorzugt wird der Reaktor im Bereich von 10^3 bis $3 \cdot 10^5$ hPa. besonders bevorzugt von $3 \cdot 10^3$ bis 10^5 hPa betrieben.

30

Die Erfindung wird nachstehend anhand der Figuren näher erläutert, ohne daß dadurch die Erfindung im Einzelnen eingeschränkt ist.

In den Figuren zeigen:

5

Fig. 1 Eine schematische Ansicht des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors mit Eduktkreislauf und Umpumpschleife 10.

10

Fig. 2a Ein Teil des Rohrbündelreaktors mit Reaktionsrohr 6 und Eduktzuleitung 4 für einen Reaktor ohne Edukt-Kreislaufführung.

Fig. 2b Ein vergrößertes Detail aus dem Längsschnitt durch das Rohr 6 nach Fig. 2a zur Erläuterung der Anordnung der Öffnung 7.

15

Fig. 2c Ein Querschnitt durch ein Reaktionsrohr 6 gemäß Fig. 2a.

Fig. 3 Ein Reaktionsrohr 6 entsprechend Fig. 2a mit Katalysatorschüttung 8.

20

Fig. 4a Einen schematischen Querschnitt durch ein erfindungsgemäßes Rohrbündel 3.

Fig. 4b Einen schematischen Querschnitt einer Variante zu dem erfindungsgemäßen Rohrbündel 3.

25

Fig. 5a Einen schematischen Längsschnitt durch ein Reaktorrohr 6 mit innenliegender Eduktzuleitung als Teil eines Eduktkreislaufs.

Fig. 5b Einen vergrößerten Ausschnitt von Fig. 5a.

30

Fig. 5c Einen Querschnitt durch das Bündelrohr 6 gemäß Fig. 5a.

Fig. 6 Einen schematischen Längsschnitt durch ein Reaktionsrohr 6 entsprechend Fig. 5a mit Katalysatorschüttung 8.

Fig.7 Eine Variante zu der Reaktorordnung gemäß Fig. 1 mit zusätzlichem Eduktkreislauf für gasförmige Edukte.

5 Fig.8 Eine Variante zu der Reaktorordnung gemäß Fig. 7, bei der die Gaszuleitung in der Nähe des Eingangs der Reaktorrohre erfolgt.

Fig.9 Eine schematische Reaktorordnung des Rohrbündel-Reaktors mit Eduktkreislauf und Umpumpschleife sowie einer adiabatischen Verweilzone 26.

Beispiele

Beispiel 1

5

In dem in Fig. 1 gezeigten Aufbau ist ein Bündel 3 von Reaktionsrohren 6 in einem Reaktorgehäuse 1 untergebracht und im Bereich der Reaktionszone von einem Wärmetauscher 5 mit einer Kondensatzuleitung 15 und einer Dampfableitung 16 umgeben. In den Reaktionsrohren 6 verlaufen Eduktzuleitungsrohre 4a, 4b, 4c, 4d, entsprechend Fig. 4a konzentrisch. Die Eduktzuleitungen 4a bis 4d sind Teil eines Eduktkreislaufes 25, in dem eine Förderpumpe 14 sowie ein Wärmetauscher 9 vorgesehen sind. Über eine Zuleitungspumpe 17 wird in der Reaktion verbrauchtes Edukt nachgeliefert. Die Reaktionsrohre 6 weisen entsprechend Fig. 5a und Fig. 5b in einem Teilbereich mit Öffnung versehene Eduktleitungen 4 auf. Durch die Vielzahl von Öffnungen 7 in der Eduktleitung 4 strömt das Edukt in die Reaktionszone des Rohres 6 ein (siehe Fig. 5b). Der Reaktor 1 mit dem Rohrbündel 3 ist Teil eines Umpumpkreislaufs 10, in dem die Reaktionsmischung und das über die Eduktzuleitung 11 oder 11- zugeführte weitere Edukt umgewälzt werden. Der Umlauf wird gefördert entsprechend Fig. 1 mit Hilfe einer Umwälzpumpe 13. In den Umpumpkreislauf ist ferner eine Querstromfiltereinheit 20 eingebaut, um aus der Reaktion erhaltenes Produkt aus dem Kreislauf entfernen zu können. Das Produkt wird abgeführt über die Ableitung 12.

15

20

In einer vereinfachten Ausführung wird entsprechend Fig. 2a anstelle des Eduktkreislaufs 25 eine einfache Eduktzuführung 4 in die Rohre 6 des Rohrbündels vorgesehen.

25

Fig. 3 zeigt einen schematischen Längsschnitt durch die gleiche Anordnung, bei der das Reaktionsrohr 6 auf seine Länge auf einer Katalysatorschüttung 8 gefüllt ist.

30

Eine erfindungsgemäße Variante der Anordnung der Reaktionsrohre 6 ist in Fig. 4b dargestellt. In Fig. 4b bilden die Zwischenräume zwischen Wärmetauscherrohren 5 rohrförmige Zwischenräume 6- als Reaktionszonen, in denen die Eduktleitungen 4 zur Zuleitung des Eduktes verlaufen. Die rohrförmigen Zwischenräume 6'- sind radial zu ihrer Längsausdehnung über Zwischenräume 27 zwischen den Wärmeträgerrohren 5 mit-

einander verbunden, wenn die Wärmetauscherrohre beabstandet sind, wie in Fig. 4b dargestellt.

5 Fig. 5a zeigt einen schematischen Längsschnitt durch ein Reaktionsrohr 6 aus einer Anordnung gemäß Fig. 1, bei dem die Eduktzuleitung 4 Teil eines Eduktkreislaufs ist, aber nur auf einem Teilbereich der Rohrlänge von Rohr 6 Öffnungen 7 (siehe Fig. 5b) aufweist. Gemäß Fig. 5c ist dabei eine konzentrische Anordnung der Eduktzuleitung 4 vorgesehen.

10 Im Falle der Variante gemäß Fig. 6 sind die Rohre 6 des Rohrbündelreaktors 1 auf ihrer gesamten Länge mit einer Katalysatorschüttung versehen

Beispiel 2

15 Für die Reaktion unter Beteiligung weiterer gasförmiger Edukte ist die Variante der Rohrbündelreaktoranordnung gemäß Fig. 7 geeignet. Hierbei wird die unter Beispiel 1 beschriebene Anordnung gemäß Fig. 1 ergänzt durch einen weiteren Eduktkreislauf 21 zur Zuführung von gasförmigen Produkten, z.B. von Wasserstoffgas. Das Gas wird über die Zuleitung 22 dem Gaskreislauf 21 zugeführt und am Gaseinlaß 18 vor dem Mischer 13 in den Umpumpkreislauf des Reaktors eingebracht. Das Gas wird mit dem im Umpump-
20 kreislauf 10 umlaufenden Reaktionsgemisch im Gegenstrom zu den über die Rohre 4 zugeführten weiteren Edukten durch die Reaktionszone der Rohre 6 geführt und in einem Gasabscheider 19 von der Reaktionsmischung getrennt. Das separierte Gas wird entweder über einen Kreiskompressor 24 in den Prozeß zurückgeführt oder am Auslaß 23 zu
25 Reinigungszwecken abgeführt.

In der Anordnung gemäß Fig. 8 ist der Einlaß für das zusätzliche Eduktgas kurz vor bzw. in der Rohröffnung der Rohre 6 angebracht. Das Gas wird durch die dichte unterschiedsbedingte Umwälzung des Reaktionsgemisches (10) in die Reaktionsrohre 6 mitgeführt und wie bei der Anordnung gemäß Fig. 7 über einen Gasabscheider 19 und einen
30 Kreiskompressor 24 dem Eingang des Reaktors wieder zugeführt.

Beispiel 3

Fig. 9 zeigt eine vereinfachte Reaktoranordnung des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors bei der anstelle der in Anordnung gemäß Beispiel 1 vorgesehene Querstromfiltration ein einfacher Produktauslaß im Umpumpkreislauf 10 vorgesehen ist. In dieser Variante ist aber dem Ausgang des Reaktorbündels 3 ein Nachreaktor 26 als adiabatischer Verweilraum nachgeschaltet, in dem die Reaktion abklingt. Die Edukte werden hier wie in Beispiel 1 über offenporige Rohrleitungen 4 und über eine Eduktzuleitung 11 in den Umpumpkreislauf eingeführt.

10

Wahlweise besitzt die Anordnung einen stationären Kontakt 8 oder es wird ein Katalysatorslurry über den Einlaß 11 und den Auslaß 12 mit zwischengeschalteter Abtrennung des Katalysators zur Recyclierung hindurchgeführt.

15

Die Umsetzung kann auch homogen katalysiert ablaufen. In diesem Fall muß der Katalysator mit den Stoffströmen über die Pumpe 17 oder den Einlaß 11 zugeführt werden.

Patentansprüche

1. Rohrbündelreaktor (1) für rasche stark exotherme Reaktionen bestehend aus einem Reaktorgehäuse (2) mit einem Bündel (3) von Rohren (6), die gegebenenfalls radial zu ihrer Längenausdehnung miteinander verbunden sind, als Reaktionszone, Eduktzuleitungen (4, 11), Produktauslaß (12) und Wärmetauscher (5) dadurch gekennzeichnet, daß eine Eduktzuleitung (4) als in den Rohren (6) der Bündel (3) verlaufende und mit einer Vielzahl von Öffnungen (7) versehene Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) ausgeführt sind, wobei die Öffnungen (7) in den Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) über die ganze Länge oder einen Längenabschnitt der Reaktionszone verteilt sind.
2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Rohre (6) eine Katalysatorschüttung aufweisen.
3. Reaktor nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der maximale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen (7) 1 mm bevorzugt 0.7 mm beträgt.
4. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der minimale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen (7) 1 μ m bevorzugt 7 μ m beträgt.
5. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Eduktzuleitung (4) Teil einer Eduktschleife mit Fördermittel (14) und Wärmetauscher (9) ist.
6. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Reaktor eine Umpumpschleife (10) für die Reaktionsmischung mit einem Fördermittel (13), einer Eduktzuleitung (11) bzw. (11)' und einen Produktauslaß (12) aufweist.
7. Reaktor nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß in der Umpumpschleife (10) des Reaktor (1) eine Katalysatorsuspension umläuft.

8. Reaktor nach den Ansprüchen 6 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß das Fördermittel (13) eine Mammutpumpe oder eine Umwälzpumpe ist.
- 5 9. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich vor dem Eingang des Rohrbündels (3) des Reaktors (1) eine Gaszuführung (18) für gasförmige Reaktanden und ggf. hinter der Gaszuführung (18) zusätzlich ein Mischerelement, insbesondere ein statischer und/oder dynamischer Mischer, angeordnet ist.
- 10 10. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß sich in dem Reaktor (1) an die aus den Rohren (6) gebildete Reaktionszone eine adiabatische Verweilzone (26) anschließt.
- 15 11. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß in der Umpumpschleife (10) eine Katalysatorzuleitung bzw. Recyclingleitung (11) und/oder die Produktableitung (12) angeordnet ist.
- 20 12. Reaktor nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Produktableitung (12) ein Absetztank mit Auslauf ist.
13. Reaktor nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Produktableitung (12) eine Filtrationseinheit (20), insbesondere eine Einheit zur Querstromfiltration ist.
- 25 14. Verwendung des Reaktors nach den Ansprüchen 1 bis 13 zur Durchführung stark exothermer Reaktionen, insbesondere zur Hydrierung von Dinitrotoluol.

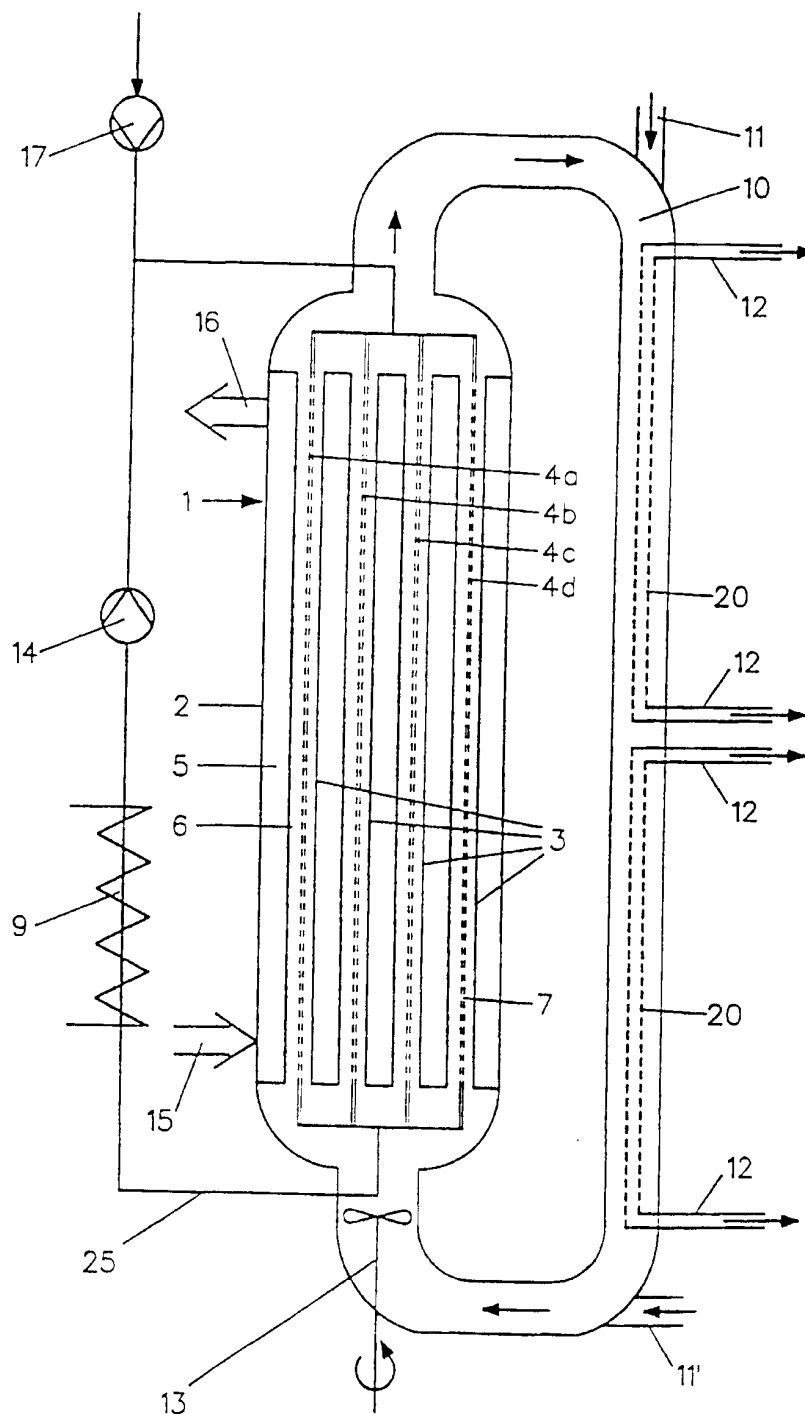


Fig.1

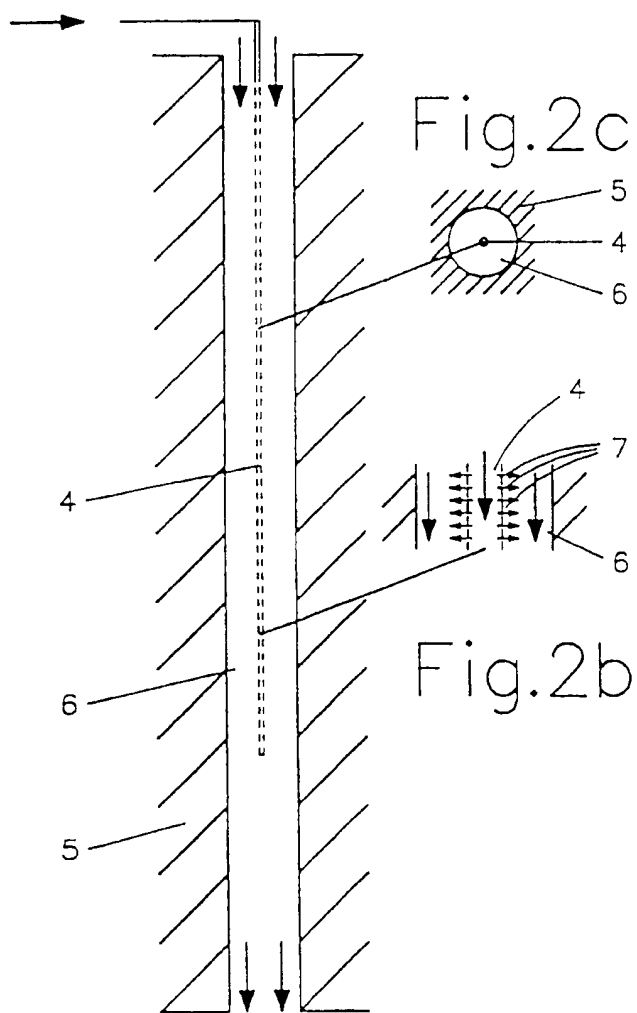


Fig. 2a

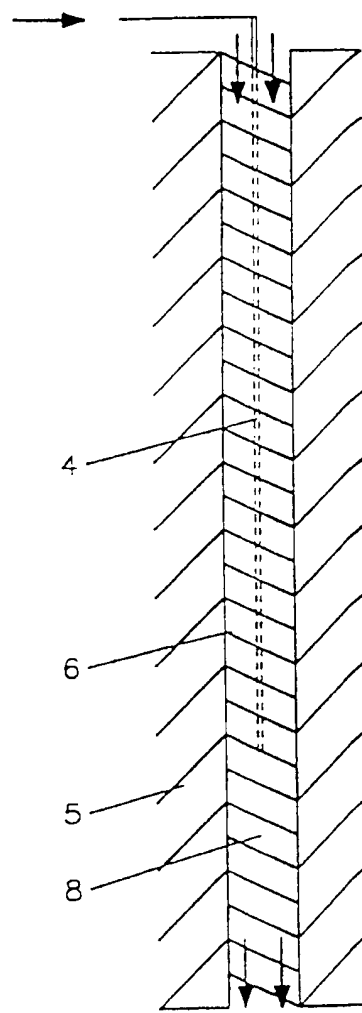


Fig. 3

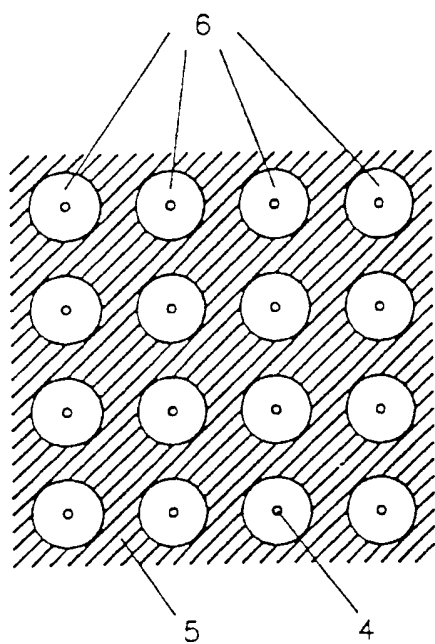


Fig. 4a

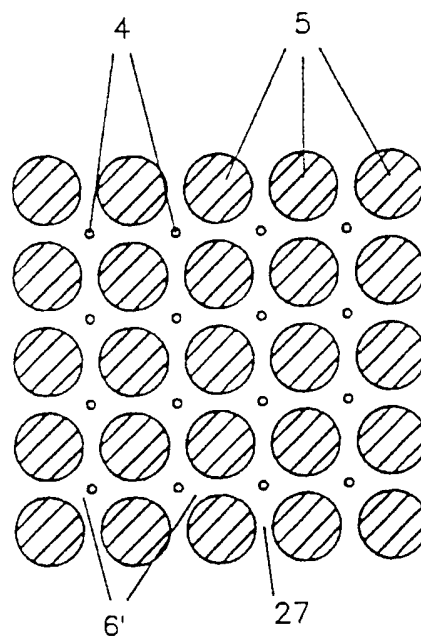
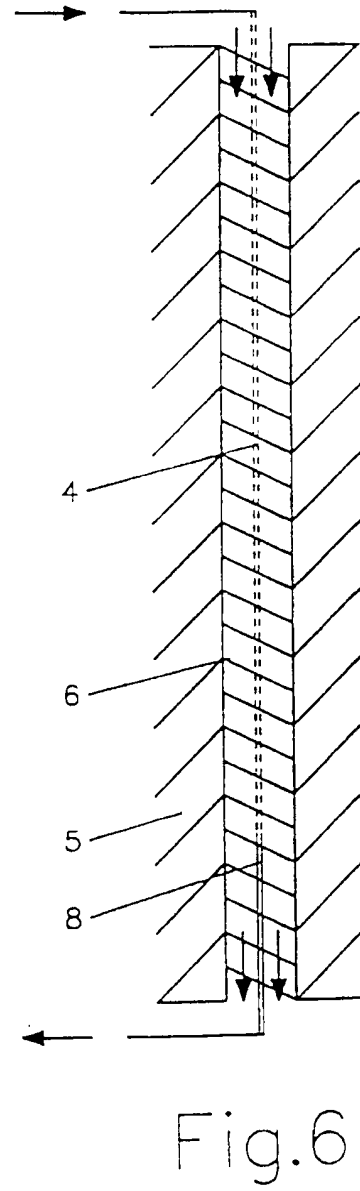
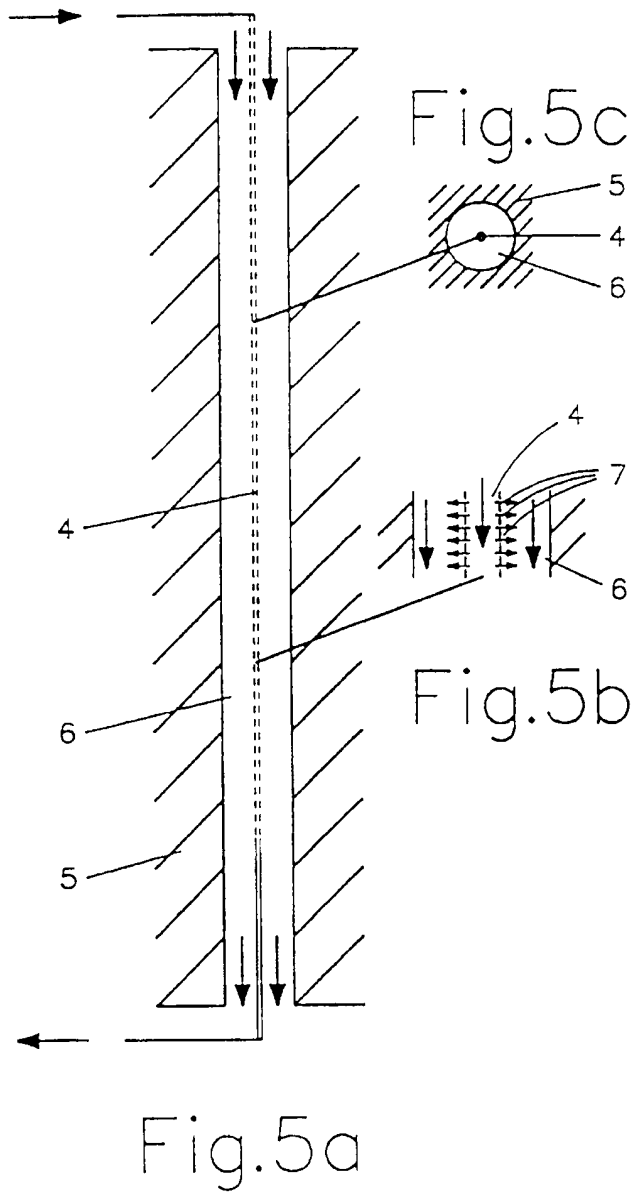


Fig. 4b



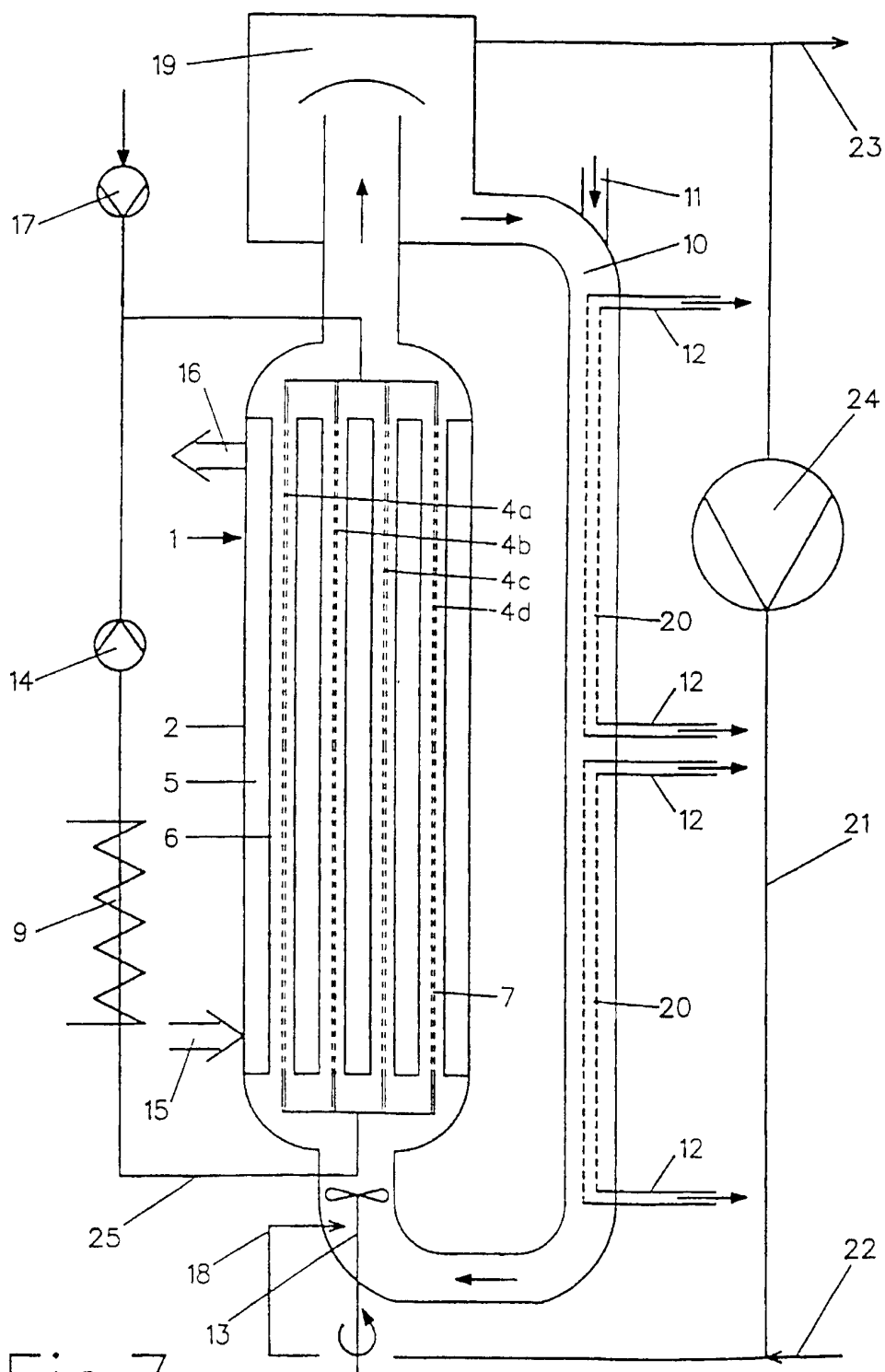


Fig.7

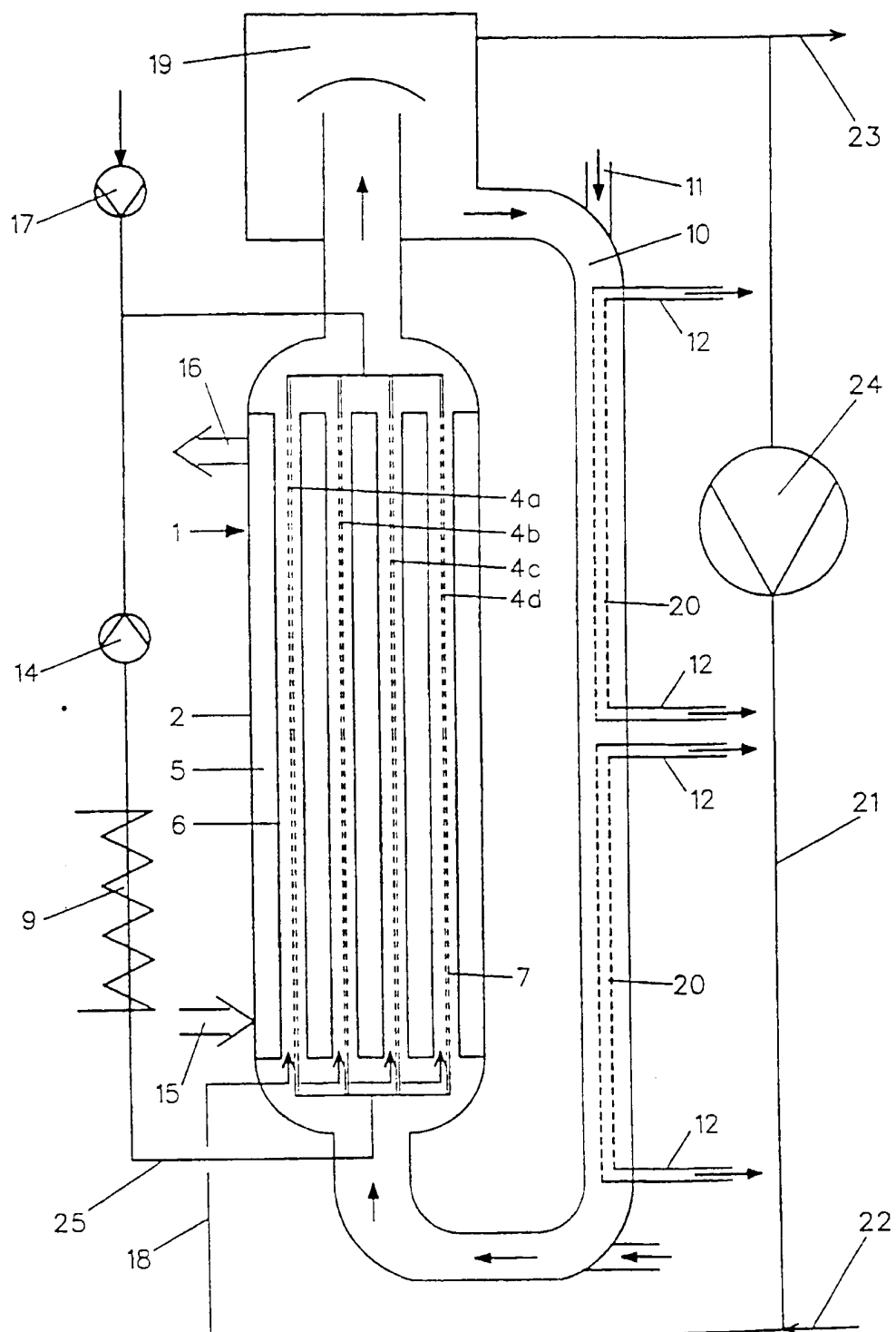


Fig.8

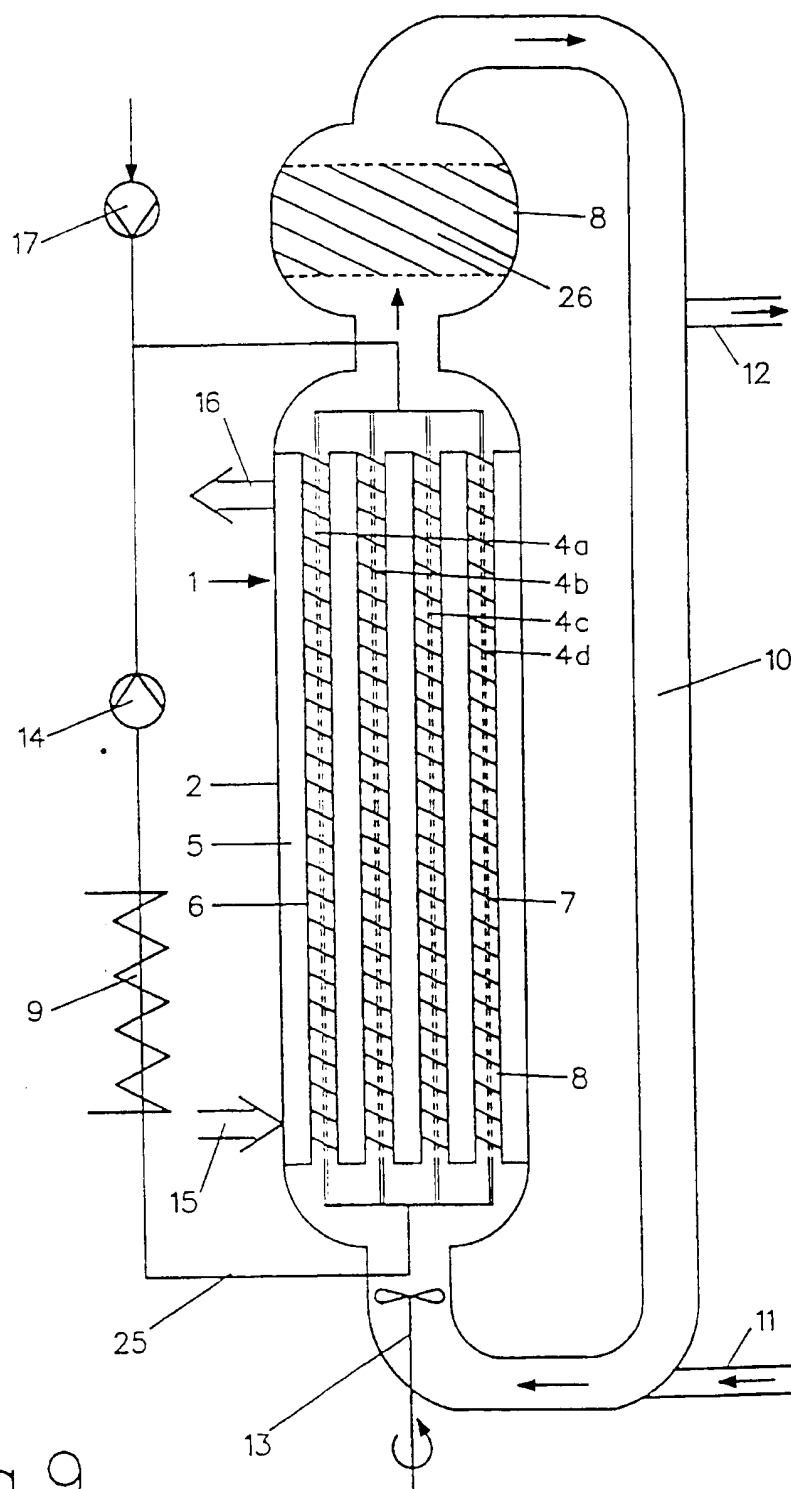


Fig.9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 98/03037

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/18 B01J8/00 B01J8/18
B01J8/22 B01J4/04 C07C209/36 C06B21/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 B01J C07C C06B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	GB 1 548 277 A (ALLIED CHEMICAL CORPORATION) 11 July 1979 see page 1, line 33 - page 2, line 5 see page 3, line 22 - line 48 see page 4, line 49 - line 63	1, 3, 4, 14
A	see page 6, line 17 - line 21 ---	5, 6
X	US 2 518 583 A (WATSON C.C.) 15 August 1950 see column 2, line 53 - column 3, line 51 see column 4, line 32 - line 62 see column 5, line 16 - line 46 see column 6, line 38 - line 72 see figures 1, 2 --- -/--	1, 2, 14

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

14 October 1998

Date of mailing of the international search report

22/10/1998

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 98/03037

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No
X	US 3 268 299 A (RUSSELL S.T.) 23 August 1966	1,2,14
A	see column 3, line 33 - line 70 see column 4, line 19 - column 5, line 11 see column 5, line 44 - line 57; figures 1-10	5,6,8-12
A	EP 0 124 010 A (BAYER AG) 7 November 1984 see claims 1-6; figure 1	1,14
A	US 2 761 768 A (ALBERT D.) 4 September 1956 see the whole document	1,5,6,8, 9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/03037

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 1548277	A	11-07-1979	NONE	
US 2518583	A	15-08-1950	NONE	
US 3268299	A	23-08-1966	NONE	
EP 0124010	A	07-11-1984	DE 3315191 A	31-10-1984
			BR 8401944 A	04-12-1984
			CA 1211757 A	23-09-1986
			JP 1744559 C	25-03-1993
			JP 4032818 B	01-06-1992
			JP 59205346 A	20-11-1984
US 2761768	A	04-09-1956	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/03037

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/18 B01J8/00 B01J8/18 B01J8/22 B01J4/04 C07C209/36 C06B21/00		
Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierte Mindestprüfstoffe (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 6 B01J C07C C06B		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	GB 1 548 277 A (ALLIED CHEMICAL CORPORATION) 11. Juli 1979 siehe Seite 1, Zeile 33 - Seite 2, Zeile 5 siehe Seite 3, Zeile 22 - Zeile 48 siehe Seite 4, Zeile 49 - Zeile 63	1,3,4,14
A	siehe Seite 6, Zeile 17 - Zeile 21 ---	5,6
X	US 2 518 583 A (WATSON C.C.) 15. August 1950 siehe Spalte 2, Zeile 53 - Spalte 3, Zeile 51 siehe Spalte 4, Zeile 32 - Zeile 62 siehe Spalte 5, Zeile 16 - Zeile 46 siehe Spalte 6, Zeile 38 - Zeile 72 siehe Abbildungen 1,2 --- -/--	1,2,14
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen: "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
14. Oktober 1998		22/10/1998
Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Vlassis, M